

# 群馬県における無機ガス調査 2016

田子博 梅田真希 齊藤由倫 熊谷貴美代

## Inorganic Gases Monitoring in Gunma, FY 2016

Hiroshi TAGO, Maki UMEDA, Yoshinori SAITOH, Kimiyo KUMAGAI

### 1. はじめに

群馬県では 2013 年度からPM<sub>2.5</sub>の成分分析を常時監視として開始した。当研究所ではこの常時監視に合わせて、2014 年度からは二次生成粒子の前駆物質である無機ガス類のモニタリングを開始し、2014 および 2015 年度の測定結果についてはすでに報告済みである（田子ら、2016）。ここでは 2016 年度の測定結果を中心に報告する。

### 2. 調査方法

無機ガスの採取はPM<sub>2.5</sub>の成分分析常時監視と同一地点、期間であり（表 1）、2016 年度は前橋および嬭恋一般局で行った。前橋一般局（以下、前橋）は前橋市郊外の群馬県衛生環境研究所敷地内で、周囲には田畑が広がっている。嬭恋一般局（以下、嬭恋）は嬭恋村総合運動公園の一角で、県内ではバックグラウンド地域に該当する。周辺は畑が多く、南に約 10 km 離れて浅間山が、北に約 15 km 離れて草津白根山がある（ともに観測期間中は噴火警戒レベル 2）。前橋は前報（田子ら、2016）と同様の方法（FP法）で測定を行った。測定項目は、二酸化硫黄、硝酸、アンモニア、塩化水素のガス状物質と粒子状物質（全粒径）である（塩化水素については本報告では解析対象としていない）。濾紙交換の間隔は、夏季の一部期間においてのみ毎日、その他の期間は 2～5 日間とした。嬭恋については 10 ライングローバルサンプラー GS-10（東京ダイレック）を用い、全自動にてサンプリングした。濾紙を装着したフォルダーはGS-10 装置内に予めセットしておいたが、装置内に放置することによるブランク値の上昇は認められなかった。濾紙交換の間隔は夏季の一部期間を除いて前橋と同じである。その他、詳細については前報（田子ら、2016）に記述した

とおりである。

表 1 サンプリング期間と地点

季節	期間	地点
春	2016/5/7-21	前橋(4)・嬭恋(4)
夏	2016/7/22-8/5	前橋(9)・嬭恋(4)
秋	2016/10/20-11/4	前橋(4)・嬭恋(4)
冬	2017/1/19-2/3	前橋(4)・嬭恋(4)

( )内はサンプル数

### 3. 結果

#### 3.1. 地点・季節別濃度

前橋、嬭恋における二酸化硫黄、硝酸ガスおよびアンモニアガス濃度（まとめて無機ガスと呼ぶ）を季節別に図 1 に示した。季節および年平均値はそれぞれの大気吸引量を加味した加重平均として求めた。二酸化硫黄について、バックグラウンド地域である嬭恋は前橋より明らかに低濃度であり、その場における人間活動の影響が小さいことに加え、地理的に関東南部からの移流の影響も小さいと考えられた。前報（田子ら、2016）で、二酸化硫黄は群馬県内においては局地的な影響は少なく、広域汚染の影響が強いと報告した。しかしながら、嬭恋のようなバックグラウンドレベルの地域と平野部とを比較すると、同じ県内でも人間活動による二酸化硫黄の濃度差が明確に現れることがわかった。

冬季においては両地点の二酸化硫黄濃度差が比較的小さいが、これは火山（浅間山）活動が影響した可能性がある。気象庁の観測によると（気象庁、2017）、浅間山からの二酸化硫黄放出量が 2016 年末から急激に上昇しており、冬季調査期間においては、他の期間の 10 倍程度の二酸化硫黄が放出されていた。ただし、嬭恋に設置してある二酸化硫黄自動測定機の値は 0.001～0.003 ppm と平常値の範囲内であった。嬭恋における冬期観測期間の主風向は西南西で

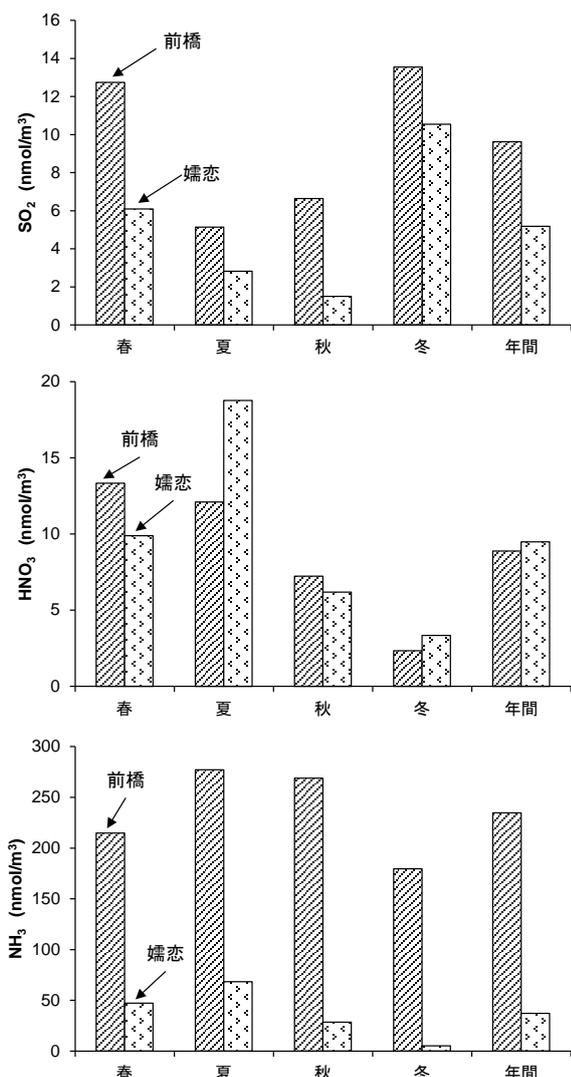


図1 季節別ガス濃度 上：二酸化硫黄、  
中：硝酸ガス、下：アンモニア

あり、浅間山と測定地点にほぼ直角方向であった。このため、感度の低い自動測定機による測定値を押し上げるまでには至らなかったが、高感度であるFP法ではその影響が現れたと推察される。

一方、硝酸ガスは前橋と孺恋では差が小さく、むしろ孺恋の方が高濃度となる場合があった(図1中段)。硝酸ガスの原因となる窒素酸化物を孺恋で測定していないが、周囲の状況から考えて前橋より低濃度と思われる。窒素酸化物は硝酸ガスと比較すれば大過剰に存在するとは言え、前橋と孺恋の硝酸ガス濃度が逆転する理由にはならない。

そこでFP法で同時に採取された硝酸粒子濃度と硝酸ガス濃度とを合わせた総硝酸濃度を求め、これを図2に示した。この図からわかるように、前橋では硝酸はその多くが粒子状として

存在しており、総硝酸濃度では孺恋の2倍程度になった。これは前述した二酸化硫黄の濃度差から考えて妥当であろう。

硝酸の粒子化は気温の低下によって促進される。高原である孺恋(2016年度の年間平均気温8.9℃)は前橋(同14.6℃)より気温が低いにもかかわらず硝酸の粒子化率が低い。これは、硝酸と粒子を形成する物質、主としてアンモニアガスが少ないことがその理由であると考えられる。これは図1(下段)から明らかであり、孺恋のアンモニアガス濃度は前橋の数分の1である。我々は同様の観測を赤城山と前橋で行い(群馬県衛生環境研究所、2017)このときにもアンモニアガス濃度の低い赤城山では硝酸の粒子化率(粒子はPM<sub>2.5</sub>)が低いという結果を得ている。ただし、図2における粒子濃度は総粒子濃度であり、硝酸塩粒子は硝酸アンモニウムのような微小粒子だけでなく、硝酸ナトリウムのような粗大粒子としても存在している。同時期に採取されたPM<sub>2.5</sub>中と総粒子中の硝酸塩粒子濃度比をみると、前橋>孺恋であった。測定方法が若干異なるが、濃度比の季節変動や範囲は、秋山ら(1999)が東京都内各地で測定した結果と概ね一致しており、本測定の正確性はある程度担保されていると言えよう。これらの結果は、孺恋における硝酸の粒子化率が前橋より低いのは粗大粒子の影響よりアンモニアガス濃度が低い影響が大きいことを支持している。

アンモニアガス濃度は前橋も孺恋も概ね暖候期に高く寒候期に低くなっている。これは、周辺の発生源の影響を受けていると考えられ(桜井ら、2002)、周囲の状況から判断してその由来は農畜産業が主と考えられる。孺恋の測定地

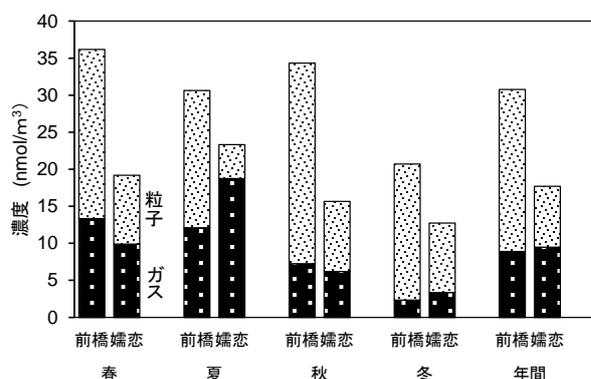


図2 状態別硝酸濃度

点に隣接しているのは運動公園であるが、その周辺はキャベツ畑が広がっている。施肥量の増加に伴い農地から大気中へ揮散するアンモニアガスも増加すると考えられるが、孺恋のアンモニアガス濃度（年平均値）は  $37.1 \text{ nmol/m}^3$  と全国的にみても低レベル（2014 年度の全国の中央値  $84.7 \text{ nmol/m}^3$ 、全国環境研協議会、2016）であり、地下水の硝酸態窒素濃度も低レベルを保っている（群馬県、2016）。熊谷ら（2009）によると、孺恋での施肥による窒素負荷は大きいものの、畜産排泄物を必要以上に農地還元する「過剰施肥」状態ではなく、群馬県内において、このような農村地域のアンモニアガス濃度は畜産地域よりも大幅に低い（下田ら、2009）。

一方で畜産地帯を抱える前橋は、大気中アンモニア濃度が全国有数の高さであり、地下水の硝酸態窒素の環境基準超過も著しく（群馬県、2016）、「過剰施肥」による窒素負荷が非常に大きい（熊谷ら、2009）。このように前橋と孺恋とでは環境中での窒素成分の存在状況が大きく異なっていた。今回の測定結果は硝酸の粒子化を抑えるためには、大気中アンモニア濃度の抑制がある程度効果的であることを示唆している。

### 3.2. 経年変動

図 3 は前橋における無機ガス濃度を 2014～2016 年度の 3 年分、季節別に示したものである。2016 年度は全ての無機ガスについて暖候期、とくに夏の濃度が低く、このため年平均値も低下した。2016 年度の夏季（7 および 8 月）におけるオゾンおよび  $\text{PM}_{2.5}$  濃度は例年並みであったが、夏期調査期間（表 1）に限ると、2014 および 2015 年度のほぼ半分であった。したがって、2016 年度の夏期調査時期は特別に大気が清浄であったと考えられた。加えてこの時期は 1 日毎にサンプリングしており、分析精度を保つのに十分な量の試料が採取できていなかった可能性もある。実際に、濾紙のブランクに近い濃度の試料も散見された。

いずれにしろ、今回の夏期調査結果は 2016 年の夏季全体を代表しているとは言い難い。本調査とは別に、我々は 2 週間毎にサンプリングしている通年調査（田子と一条、2014）を行っているが、この結果では 2016 年度夏季（7 月および 8 月）の無機ガス濃度は 2014 および

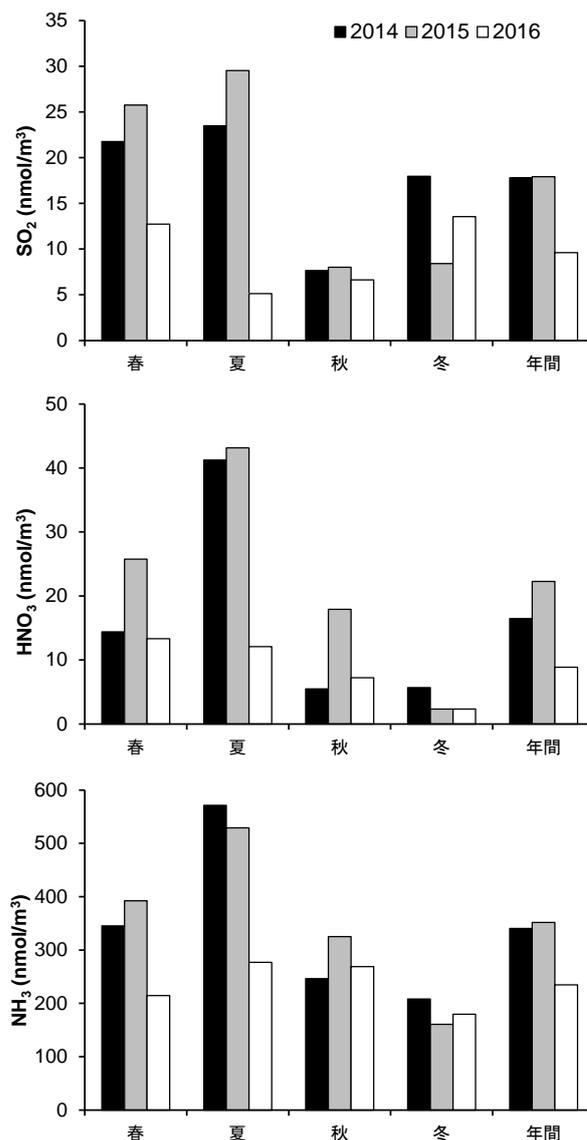


図 3 3 年間の季節別濃度の比較  
上：二酸化硫黄、中：硝酸ガス  
下：アンモニアガス

2015 年度並みであり、前述したオゾンや  $\text{PM}_{2.5}$  濃度と矛盾していない。2014 および 2015 年度の結果からは、本調査の手法（季節毎に 2 週間のサンプリング）で概ねその季節の代表性が得られていた（田子ら、2016）が、今回の事例は必ずしも代表性が得られるわけではないことを示唆している。

## 4. まとめ

前橋および孺恋において大気中無機ガスの測定を行った。過去の調査から二酸化硫黄濃度は平野部においては県内で大きな差異が認められなかったが、バックグラウンドレベルの山間地（孺恋）では明らかに濃度が低く、人間活動の

程度を反映することがわかった。一方で硝酸ガス濃度は単純に人間活動の程度を反映するわけではなく、ガス/粒子の分配率の影響が大きい。この分配率は共存するアンモニアガス濃度の影響を強く受ける可能性が示された。すなわち、アンモニアガスが大過剰に存在する状況では、硝酸は粒子化する割合が増加する。

以上の知見はバックグラウンド地点の測定を行ったことにより得られたものである。ある地点における人為的影響等を考えるにあたり、バックグラウンド地点のデータはそのベースとなるため、改めてバックグラウンド地点での測定の重要性が示されたと言える。

前橋において、過去3年分の無機ガス濃度を比較した。夏季の無機ガス濃度が2014および2015年度より大幅に低かったが、これは2016年度の調査期間が大気のとくに清浄であった時期と重なったためである可能性が高く、季節を必ずしも代表していないと考えられた。各季節2週間の観測という現状の方法は、調査にかかるコストやマンパワーと得られるデータの質のバランスから妥当と思われるが、今回の事例のように必ずしも季節の代表性が得られるとは限らない点に留意する必要がある。

## 文 献

- 秋山薫、吉岡秀俊、鎌滝裕輝、石井康一郎、三好康彦. 浮遊粒子状物質中の水溶性成分の粒径分布. 東京都環境科学研究所年報, 1999; 22-28.
- 気象庁. 浅間山火山ガス放出量, 2017; [http://www.data.jma.go.jp/svd/vois/data/tokyo/306\\_Asamayama/306\\_So2emission.htm](http://www.data.jma.go.jp/svd/vois/data/tokyo/306_Asamayama/306_So2emission.htm) (2017年4月アクセス)
- 群馬県. 平成28年版環境白書. 2016. p 64.
- 群馬県衛生環境研究所. 有機マーカに着目したPM<sub>2.5</sub>の動態把握と正値行列因子分解モデルによる発生源寄与評価(5-1403), 環境省環境研究総合推進費終了研究等成果報告書, 2017.
- 熊谷貴美代、富岡淳、小澤邦壽. 群馬県における地下水への窒素負荷分布の推定. 全国環境研会誌, 2009; 34(1): 29-35.
- 桜井達也、清野能弘、中江茂、藤田慎一. 関東地方におけるアンモニアの動態解析. 大気環境学会誌, 2002; 37: 155-165.
- 下田美里、熊谷貴美代、飯島明宏、小澤邦壽. 大気中窒素化合物の乾性沈着量の地域特性評価. 全国環境研会誌, 2009; 34(1): 23-28.
- 田子博、一条美和子. 前橋における酸性雨調査. 群馬県衛生環境研究所年報, 2014; 46: 33-37.
- 田子博、木村真也、一条美和子、齊藤由倫、熊谷貴美代. 群馬県における無機ガス調査. 群馬県衛生環境研究所年報, 2016; 48: 38-43.
- 全国環境研協議会. 第5次酸性雨全国調査報告書(平成26年度). 全国環境研会誌, 2016; 41(3): 2-37.